EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER

02234358

PUBLICATION DATE

17-09-90

APPLICATION DATE

07-03-89

APPLICATION NUMBER

01052952

APPLICANT: NIPPON SOKEN INC:

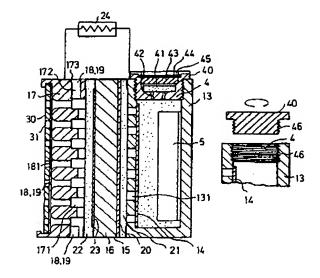
INVENTOR: NISHIKAWA YOSHIHIRO;

INT.CL.

H01M 8/04 H01M 8/22

TITLE

FUEL CELL



ABSTRACT: PURPOSE: To improve an output by converting a solid-state or gel-stage fuel into a gas-stage by physical or chemical means and using it as a fuel.

> CONSTITUTION: Electricity is generated by using a solid fuel while the fuel being gasified. When a solid or gel fuel, if necessary with water, is injected to the inside of a separator 13 from a fuel injection hole 4 and heated or the pressure is decreased, the fuel and water are evaporated until they reaches saturated vapor pressure in the separator 13. The vapor is then permeated through a gas permeable membrane 14, reaches a catalyst layer 20 of a fuel electrode 21, and produces H⁺ ion and e⁻ electron by reaction. H+ ion passes through an electrolyte layer 16 and electron e passes the fuel electrode 21, the separator 13, an outer load 24, a separator 17, and an air electrode 22 and moves to a catalyst layer 23 of the air electrode side and is reacted to become H₂O and the H₂O is discharged from water discharging hole 19 and a connected ditch 172. By this, not like the case of using a liquid fuel, electrolytic material in the electrolyte layer does not flow in the fuel and the lowering of the output of a fuel cell can be avoided.

COPYRIGHT: (C)1990,JPO&Japio

⑩ 日本国特許庁(JP)

① 特許出願公開

@ 公 開 特 許 公 報 (A) 平2-234358

®Int. Cl. 5

識別記号 庁内整理番号 每公開 平成2年(1990)9月17日

H 01 M

7623-5H 7623-5H J Z

> 未請求 請求項の数 4 審査請求 (全9頁)

50発明の名称 燃料電池

> ②特 顧 平1-52952

願 平1(1989)3月7日 22出

個発 明 者 原 賢 治 金

愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地 株式会社日本自動車部 7.3

品総合研究所内

明 頭 揻 彦 個発 者 猪

愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地 株式会社日本自動車部

品総合研究所内

@発 明 者 頂 康 行 愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地 株式会社日本自動車部

品総合研究所内

勿出 顧 株式会社日本自動車部 人

愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地

品総合研究所

弁理士 青 木 朗 外4名

19代 理 人 最終頁に続く

発明の名称 燃料電池

特許請求の範囲

- 1. 少くとも燃料極側の燃料供給用セパレータ、 燃料極、電解質層、空気極、空気極側のセパレー タとから構成される燃料電池であって、該燃料極 側の燃料供給用セパレータにおいて、固形状態ま たはケル状態にある燃料を物理的または化学的手 段により気体状態に変換し、これを燃料として使 用することを特徴とする燃料電池。
- 2. 固形又はゲル状の状態の燃料は液体あるい は気体燃料を吸着材に吸着したものであることを 特徴とする請求項1記載の燃料電池。
- 3 該物理的手段は加熱手段又は波圧手段であ ることを特徴とする請求項1記載の燃料電池。
- 4. 該燃料供給用セパレータがこれとは別個に 設けられた固形状燃料が収納される燃料タンクと 適宜の通路を介して接続されており、該燃料タン クから発生された気体燃料が該通路を介して該セ

パレータに供給されるように構成されていること を特徴とする請求項1記載の燃料電池。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

液体又は気体の燃料を固形又はゲル状の状態に し、物理的または化学的手段により気体燃料とし て使用する燃料電池に関し、特には、メタノール 等の燃料を高分子の材料等に吸着し固形化した燃 料を気体化して燃料極側へ供給するようにした燃 料電池に関するものである。

〔従来の技術〕

従来の燃料電池に使用されている燃料には、例 えば硫酸、水、メタノールを混合したアノライト と称される液体燃料を用いたものが公知である。 しかし、高濃度の硫酸が上記液体燃料中に含まれ ている為、電解質層に含浸した硫酸が燃料中に流 出しイオン輪率が低下するという結果になる。

特開平2-234358(2)

(発明が解決しようとする課題)

従来における液体燃料を使用した燃料電池においては上述したような問題から燃料電池そのものの出力が低下する恐れがあった。

本発明の目的はかかる従来技術の欠点を改良し、 出力を向上させることが可能な燃料電池を提供す るものである。

(課題を解決するための手段)

本発明に係る燃料電池は上記目的を達成するために次のような構成を採用するものである。 即ち、

少くとも燃料極側の燃料供給用セパレータ、燃料極、電解質層、空気極、空気極側のセパレータとから構成される燃料電池であって、該燃料極側の燃料供給用セパレータにおいて、固形状態またはケル状態にある燃料を物理的または化学的手段により気体状態に変換し、これを燃料として使用する燃料電池である。つまり本発明に係る燃料電池の基本的技術思想は固形又はゲル状(以下単に固

形燃料と云う)の燃料を適宜ガス化つまり気体状態に変換しなから使用するものである。 更に本発明における燃料電池においては、かかる固形又はゲル状或は粒子状の固形燃料を燃料供給用セパパータ内に直接収納する構造の燃料電池と、 該固形燃料を気体状態に 変換するため加熱手段もしくは減圧手段が設けられるものである。

(作用)

本発明にあっては上記したような固形燃料を使用しこれをガス化しながら発電を行うものである ため、液体燃料を使用した場合の欠点が解消される。

(実施例)

以下、本発明に係る燃料電池についての実施例 を図面を用いて詳細に説明する。

第1図は本発明における単位電池の模式図である。本発明における単位燃料電池の構造は第1図に示されるように少くとも燃料極側の燃料供給用セパレータ13、燃料極21、電解質層16、空気極22、及び空気極側のセパレータ17とから構成されているものである。第1図において、13は燃料極21側の燃料供給用セパレータであり、カーボンを主成分とする、電性の材料で異なが外にはあり、触媒層20で発生した電子を集め外にはある。

該セパレータ13には、燃料を注入する為の燃料 注入孔4を設置する。注入孔4にはネジ部46を 介して栓40が固定される。該セパレータ13の 内部には、例えば凹凸を有し、該セパレータ13 の一部と一ヶ所以上で接触する部分を持ち、該セ パレータ13の熱を注入された固形燃料に伝達す る為の熱伝導板5が設けられている。注入された 該燃料は、セパレータ13の空気と接触し、蒸発 板5及びセパレータ13内の空気と接触し、蒸発 を開始する。発生した蒸気である気体燃料は、該セパレータ13内の、燃料極21と接する面に設けられた導通孔131の入口部分に接合された気体透過膜14を透過し燃料極21に拡散する。

本発明に係る燃料極21は例えばシート状にすいたカーボン繊維にフェノール樹脂を含没させ2000で以上の不活性雰囲気中で焼成した多孔更にないった。以上の不活性雰囲気であってもよくり更にない。はカーボンペーパーの片面(気体透過膜14と接しない面、即ち導伝電解質層16と接する。以上では例えば、カーボンブラック(例えばライオ・レンは例えば、カーボンブラック)等にPtとRuを担持した触媒と撥水性粒子であるボリテトラフルオロエチレン(PTPE)及びボリビニルアルコール(PVA)

等の界面活性剤と水とを均一に混練しベースト状にした混合物を該カーボンベーパー上に墜布し 320℃窒素雰囲気中で焼成したものが使用される。 本発明における電解質層16は例えばイオン交

14.2

特開平2-234358 (3)

換膜等で構成されるものであり、具体的には前述 の燃料極21と該電解質層16とをホットプレス 等の手段により圧着した後シール部分となる端部 に撥水性を有するゴム又はテフロンテープ等を用 いてシール15を形成し、気体燃料、水及び電解 質層であるイオン交換膜16中の電解液の洩れを 防止した構造となっている。さらに本発明におい ては該電解質層16の他の片面に空気極22を設 けるものである。該空気極22は例えば前記した 燃料極21で使用したと同一のカーボンペーパー で構成されたものであってもよく、更に該カーボ ンペーパーの該電解質層 1 6 と対向する面に、例 えばカーボンプラックにPt を担持した触媒を PTPEをバインダーとして該カーボンペーパーに塗 布形成した触媒層23が形成されておりさらに該 両者の端部をゴム又はテフロンテープ等でシール 15したものである。

更に本発明においては該空気極 2 2 に接して空気 極側のセパレータ 1 7 を設けたものである。

該空気極側セパレータ17は第2図に示すよう

に、外気と導通する複数個の空気孔 1 8 及び水排出孔 1 9 を有しておりかつ各々は、隣接する空気孔 1 8、水排出孔 1 9 と連通溝171 で互につながっている。又、各セパレータ 1 7 の側面部には上記した連通孔が外部と連通する溝部 172.173がそれぞれ設けられている。

該空気極側セパレータ17の外側面には該セパレータ17の外方壁部分には空気極側セパレータ 17に開けられた穴18と重なる位置に貫通孔31 を有するプレート30を設け、前記プレートを可 動自在とすることにより、該空気孔18の開度を 任意に変えることができる。

本発明においては、かかる2種類のセパレータ、 13と17、燃料極21、空気極22、及び電解 質層16とを、各部の接触抵抗をなくする為図示 しない締付具にて固定して一体化としてある。 尚、本発明にあっては該燃料供給用セパレータ 13はカートリッジ方式とし、燃料電池本体とは 着脱自在となるよう構成したものであっても良い。 本発明においては固形またはゲル状態の燃料の成

また、燃料の形態としては固形、ゲル状に拘わらず粒子状としてもよい。本発明においては、上述した吸着材に燃料と水を吸着して固形化又はゲル化したものを使用することが好ましい。

本発明における固形燃料は例えば特開昭50-138001、特開昭50-103501等に示された方法により製造された、ゲル状又は固形のメタノール含有 燃料を60で以上に加熱し一度液体の状態にし、これに水10mt%を加え冷却し、固形分5mt%、水10mt%メタノール85mt%を含むケル状又は固形の燃料として製造する方法であってもよく又、有機高分子体に燃料である、メタノール、ホルマリン、ギ酸に水をモル比で1:1の割合で加え、燃料の粘度を高くするために増粘材を添加し攪拌して作るものであってもよい。

又本発明においてはゲル状又は固形の燃料を、 樹脂又は紙等の薄い基材 6 1 の片面又は両面に含 没し、第 4 図のような波形又は第 5 図のような渦 巻状にし燃料用セパレーク内部に挿入するように してもよい。図中 6 4 が燃料である。このように 形成することにより、燃料の蒸発面積を多くする と蒸発量が増加する為燃料極内部のメタノール分 圧が上昇し出力を向上できるという利点がある。

本発明において使用される電解質層 1 6 は特に限定されるものではないが例えば陽イオン交換膜であるDu Pont 社製"ナフィオン" (登録商標) 117 等を 100℃の蒸留水で 4 時間煮沸後、 3 mo!

/ L の硫酸水に

12時間浸漬し硫酸を十分含浸したものを用いる ことが出来る。

次に本発明においては、該燃料極21と該燃料極側のセパレータ13における該燃料極に近接する部分に気体透過膜14が設けられているものであって、該気体透過膜14は該セパレータ13の燃料極21と接する面における気体通過孔131が多数設けられている壁面に添着して設けられるものである。第1図においては該気体透過膜14は該壁面のセパレータの内側に添着されている例を示しているがその反対方向即ち燃料極側の面に設けることも出来る。

気体透過膜14は例えばボリプロピレン製の多孔 質膜であってもよい。かかる気体透過膜を使用することによって、電池の温度が上昇し、例えばメ タノールを主体とする固形燃料蒸発速度が上昇し た場合でも燃料極21に供給されるメタノール量 を一定値に保ち、過剰のメタノールが燃料極21 に供給されるのを防止できる為、燃料極21で分 解されずイオン交換膜16を透過し空気極22へ 捜れるメタノール量を減少せしめることが可能と なる。その結果、外気温度が上昇しても、空気極 22へ洩れて燃焼するメタノール量が一定となり、 電池本体の温度を一定値に保つことができるので 燃料の過剰な蒸発がなくなり、燃料利用率を向上 できる。

本発明にあっては、該固形燃料を気化する手段 としては、公知の物理的又は化学的手段を使用す れば良いのであるが一般的には加熱手段又は浅圧 手段を採用することが好ましい。

本発明において該固形燃料を加熱する手段としては、燃料電池の自己発熱を利用すること、或は外部の電源もしくは該燃料電池の出力電源と接続された加熱用ヒーターを利用するものであっても 良い。

前配のように燃料電池の自己発熱を利用する場合の一例としては、

該燃料極側のセパレータ13内に該セパレータと 少くとも1ヶ所で接合されている熱伝導板5を設

かかる構造をとることによって該熱伝導板5は 雰囲気温度が低い時、燃料の蒸発量を促進する物であり、電池の作動温度が低い状態つまり起動時 又は電池の自己発熱によって得られる熱量を効率 良く固形燃料に伝達し、燃料の蒸発を促進する。 さらに熱伝導板5は波形の板となっている為固形 燃料とこの熱伝導板との蒸発面積を大幅に向上できるとともに、蒸発量を安定化することができる。一方本発明における空気極側のセパレータ17の外側即ち可動プレート31が存在する側には図示されていないマニホルドが設けられ、空気は該マニホルドから該セパレータ17に設けた空気流入118を介して流入し、該空気流入孔18とこれを連続する連通孔171を介して空気極22に拡散される。

又空気流は該セパレータ17の側面部に設けた溝部 172,173を介しても流入される。この実施例においては空気極への空気導入方法は空気の自然対流によってなされるものであり、又実施例の様にセパレータ17に外気と導通する穴及び溝を付けることで、電池をいかなる角度に置いたとしても、空気がセパレータ17内に流入することが出来るので出力の低下は生じない。また連通孔172,173には通気抵抗を減少する為その開口部の面積を消部の通路面積よりも大きくしてある。

次に本発明においては、燃料供給用セパレータ

特開平2~234358 (5)

13内に固形燃料を注入してこれを気化させなが ら使用するものであるが、燃料極で発生する炭酸 ガス(CO:)を効率よく排出すること又、余剰の有 害なガス化燃料例えばメタノール蒸気等を外部に 放出しないようにすることが燃料電池の出力向上 及び環境保全上好ましいことであるため該燃料タ ンクとしてのセパレータ13に次の構造を付加す ることが望ましい。即ち該セパレータの一部に外 気と連通する開孔部4が設けられ、更に開孔部4 には気体燃料を吸着する層 4 1 と該吸着された気 体燃料を燃焼させる層 4 3 及びガス分離層膜 4 4 とが設けられるものである。より具体的には、第 1 図に示されるように燃料の注入、挿入口である 開孔部4に栓体40をねじ部46を介して着脱自 在に取りつけるとともに、該栓体40に線孔42 を設け更にその上に表面を例えば親水処理した多 孔質の樹脂またはグラスウールからなる吸着材層 41、該吸着材に吸着された例えばメタノールを 燃焼させる例えば白金、ルテニウム、パラジウム、 - スズ等の金属を担体に担持した粉末が撥水性を有

する粒子で固定されて層状に形成されたものである。

触媒層 43、及びガス分離膜層 44とが積層されているものである。燃料極 21 で発生したC0 。及び余剰のメタノール蒸気は燃料注入口の栓 40 内に設けた細孔 42を介して吸着材層 41 に入り、メクノールは吸着材 41 に吸着され吸着材 41 の上部に設けた触媒層 43 で空気と反応しCH 。01 十 $\frac{3}{2}$ 0 。+21 。0 の反応によりC0 。と11 。0 になる。そして、11 。0 は吸着材 41 に吸着され又C0 。は燃料極で発生したC0 。とともにガス分離膜 44、カス分離膜の押えであるメッシュ 45 を透過し大気に放出される。

次に上記により構成された本発明に係る燃料電池の1具体例における作動について説明する。 燃料注入開孔部4より燃料極側のセパレータ13 内に固形又はゲル状の燃料及び必要により水とを 注入し適当に被圧又は加熱すると、該燃料及び水 はセパレータ13内の飽和蒸気圧に達するまで蒸

発しセパレータ内13を満し、拡散によってガス 透過膜14を蒸気の状態で透過し燃料極21の触 媒層20に至り、触媒層20において気体燃料が メタノールであればメタノールガスと水が下記の 様に反応する。

空気極で発生したH₂0 は空気流入孔 1 8、水排出孔 1 9、連通溝172 より蒸気又は水滴となって大気に放出される。

3/20: +6 H · +6 e - - 3 H z O

本発明と従来技術とを比較してみると、従来例例えば特開昭58-186170においては本発明と同様 非流動性の燃料を用いている点は同じであるが従 来例では燃料極と固形化した燃料の間に、アノラ イト又は燃料等の液体が満されている為燃料は液 体の状態で燃料極に供給される。この場合燃料極で発生したCO、ガスは燃料容器内がアノライト等の液で満されている為燃料極表面に気泡となって付着する為燃料の供給が阻害されてしまう欠点がある。然しながら、本発明においては、燃料が蒸気となって拡散する為CO。の排出が行なわれ易くなり燃料の供給速度が早く従来例に比べ濃度過電圧の低下が少ない。

特開平2-234358 (6)

該分離膜がCO. が通る膜であればメタノール蒸気 も外部に使れることになるので完全な対策とは言 えなかった。本発明は上述に示す様な構成とする ことでCO. のみを外部に排出することができ、メ クノール又はホルマリン等の刺薬が外部に使れる ことがなく安全性を確保することが可能である。

次に本発明における燃料電池の他の実施例について第6図を用いて説明する。

ータ13は単なる気化状燃料を燃料極に供給する **機能を有するものであって、好ましくは第2図に** 示されるような気体通過孔と各気体通過孔をつな ぐ連結湖を有する板状体を内蔵しているものであ る。本発明にあっては該通路71の適宜の場所に 気体燃料を加湿する手段67が設けられているこ とが好ましく、それにより燃料極21に供給され る気体燃料は水分を含む加湿された状態の燃料 69となる。該加湿手段は例えば適宜の水溜め 68から水を供給される該通路の一部を囲挽する チャンバーで構成されているものであり該水溜め 6 8 には空気極 2 2 で発生した水 (H₂0)を貯めて おく構造であっても良い。このように構成するこ とにより空気極で発生した水を外部に渡すことな く燃料極に入れることが出来る。更に、該燃料タ ンク60には固形状燃料64を加熱する手段が設 けられていることが好ましく、その具体例として は前述したような熱伝導板5のようなものであっ ても良く、又第6図に示すような適宜の補助電源 63と接続されたヒーター73を用いるものであ

っても良い。又かかる該加熱手段が、前記の例でも説明したように燃料電池の負荷24に応じて電気的に加熱されるものであってもよい。一方本具体例における燃料タンク60の燃料注入孔4には第1図で示されるセパレータ13の燃料注入孔に設けられたものと同じような気体分離機構を設けることも出来る。

又該補助燃焼槽 6 6 に温度センサー 7 0 を設けておき、該センサーを適宜のコントローラ 6 2 を介

して燃料タンク内のヒーター73を制御するようにしておけば、該センサー70により検出された補助燃焼借66の温度によりコントローラ62をUN-OFF 制御してヒーター73の温度を調整し固形燃料の蒸発量をコントロールすることが出来る。同様に該燃料電池の負荷24がその信号を該コントローラ62の切替によってヒーター73を直接負荷24にて制御することも出来る。

第7図は、固形状態またはゲル状態にある燃料を化学的手段により気気明すると、燃料極側を示べ材のである。構成を担けした多孔質の金額が外のである。構成を担けした多孔質の金額が外のである。構成を担けした多孔質の一部が外が、このを挿入し、この機能を有する弁555を料には強いできると同時に、燃料を触ばできる。というというというの一部にセラッミック層52を溶射により形をして、システスを受ける。

特開平2-234358 (フ)

成した多孔質体の表面に自金又は自金―ルテニウム等の酸化触媒 5 3 を担持した触媒付プレートと、 燃料をいれたセパレータ 1 3 に外気を導通するように関けられた穴 5 4 及び外気との導通面積を制御する弁 5 5 とからなる。上記触媒付プレートは 触媒を担持した面が穴 5 4 と対向するよう設置される。

固形燃料の気化を促進する場合は、外気との通路面積を広げるよう弁55を回転し、セパレータ 13の燃料室内に流入する空気量を増加させれば よい。

なお、本発明は、上記各実施例のいわゆる酸性型燃料電池に限定されるものではなく、アルカリ型燃料電池にも適用できることはいうまでもない。また、生石灰と水とを混ぜ発熱させてその熱で固形またはゲル状燃料を気体状態に変換したり、あるいは酸化第1鉄に空気を接触させて発熱させ、この熱で上記燃料を気体状態に変換してもよい。

(効果)

本発明は上記した構成を有するから、液体燃料を用いた場合のように、電解質層中の電解質が燃料中に流出することがなく、従って燃料電池としての出力低下を回避出来る。

4. 図面の簡単な説明

第1図Aは本発明に係る燃料電池の1実施例を 示す倒部断面図である。

第1図Bは第1図における燃料供給用セパレー タの燃料注入孔と栓部とを分離して示した断面図 である。

第2図は空気振倒セパレータの構造を示す斜視 図である。

第3図は燃料極側セパレータ内に設けられた熱 伝導板の配置の例を示す断面図である。

第4図及び第5図は固形燃料の形態の好ましい 一例を示す図である。

·第6図は本発明に係る燃料電池の他の実施例を示す断面図である。

第7図は固体燃料を気体燃料に変換する手段の

例を示す図である。

4 …燃料往入孔、 5 … 熱伝導板、

13…燃料極側セパレータ、

14…気体透過膜、15…シール、

16…電解質層、 17…空気極側セパレータ、

18…空気孔、 19…水排出孔、

20, 23…触媒曆、 21, 22…燃料極、

24…負荷、 30…プレート、

31…對週孔、 40… 栓体、

4 1 … 吸着層、 4 2 … 細孔、

43…燃焼層、 44…ガス分離層、

45…メッシュ、 46…ねじ部、

50…プレート、

51…スプリング状物体、

52…セラミック層、

5 3 … 触媒、 5 4 … 穴、

55…弁、 60…燃料タンク、

61…基材、 62…コントローラ、

63…補助電源、 64…固形燃料、

65 … フィン、 66 … 補助燃焼槽、

6 7 … 加湿器 、 6 8 … 水溜、

69…加湿された気体燃料、

70…温度センサー、

71, 72…通路、 73…ヒーター、

171 …連通海、 172,173 …海部、

181 … 拡大開口部。

特許出願人

株式会社 日本自動車部品総合研究所 特許出願代理人

山雅也

弁理士 胄 木 朗

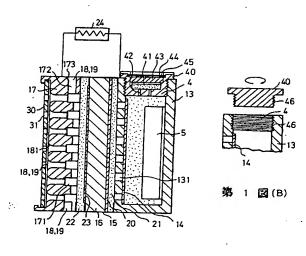
弁理士 石 田 敬

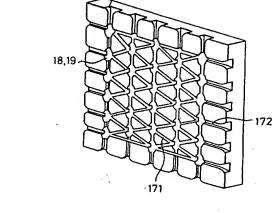
弁理士 畑 泰 之

弁理士 山 口 昭 之

弁理士 西

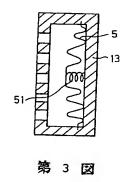
持開平2-234358 (8)

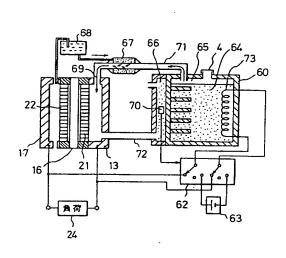




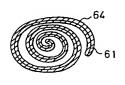
第 1 図(A)

第 2 図





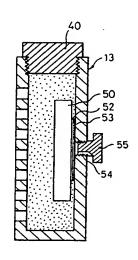
61



第 4 図

第 5 図

第6回 图



第 7 図

第1頁	「の制	たき						
⑫発	明	者	大	道	重	樹	愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地	株式会社日本自動車部
							品総合研究所内	
個発	明	者	西	Ш	佳	弘	愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地	株式会社日本自動車部
	•						品総合研究所内	

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☑ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☐ OTHER:

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY